

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-86412

(P2000-86412A)

(43) 公開日 平成12年3月28日 (2000.3.28)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
A 0 1 N 43/90	1 0 4	A 0 1 N 43/90	1 0 4
	1 0 5		1 0 5
25/30		25/30	
// C 0 7 D 487/04	1 4 2	C 0 7 D 487/04	1 4 2
	1 4 6		1 4 6

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-250142

(22) 出願日 平成11年9月3日 (1999.9.3)

(31) 優先権主張番号 09/150557

(32) 優先日 平成10年9月10日 (1998.9.10)

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 591000791

アメリカン・サイアミド・カンパニー
AMERICAN CYANAMID C
OMPANY

アメリカ合衆国ニュージャージー州07940
-0874 マディソン・ファイブジラルダフ
アームス (番地なし)

(72) 発明者 エバルト・ジーフエルディング

ドイツ・デー-55578ザンクトヨハン・ア
ウフデムエビガー15

(74) 代理人 100060782

弁理士 小田島 平吉 (外1名)

最終頁に続く

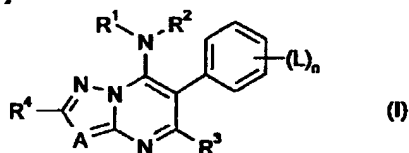
(54) 【発明の名称】 殺菌・殺カビ混合物

(57) 【要約】

【課題】 強い相乗作用を示す殺菌・殺カビ混合物の提供。

【解決手段】 許容しうるキャリアーおよび/または界面活性剤ならびに (a) 少なくとも1種の式 I

【化1】



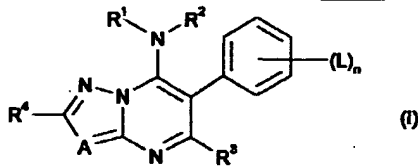
【式中、R¹~R²、L、Aおよびnは、第1項で定義された意味をもつ】のアゾロピリミジンと、(b) 少なくとも1種のメラニン生成阻害剤 (M B I) の相乗作用有効量を含有する殺菌・殺カビ組成物。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 許容しうるキャリアーおよび/または界面活性剤、ならびに (a) 少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジン

【化1】



〔式中、R¹およびR²は、各々独立して、水素、または場合によっては置換されているアルキル、アルケニル、アルキニル、アルカジエニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、ビスシクロアルキルもしくはヘテロシクリル基を表すか、あるいはR¹およびR²は、隣接する窒素原子と一緒に、場合によっては置換されている複素環式環を表し、

R³は、水素もしくはハロゲン原子、またはアルキル基を表し、

R⁴は、水素、またはアルキルもしくはアリール基を表し、

Lは、ハロゲン原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルコキシ基を表し、

Aは、NもしくはCR⁵（式中、R⁵は、R⁴について定義された意味をもつ）を表し、そしてnは、0または整数1～5である〕；および (b) メラニン生成を阻害することができる少なくとも1種の殺菌・殺カビ有効成分、の相乗作用有効量を含有する殺菌・殺カビ組成物。

【請求項2】 請求項1記載の少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジンおよび少なくとも1種のメラニン生成阻害剤の相乗作用有効量を、場所に施用することを含む、ある場所における植物病原性菌・カビ類の増殖を抑制する方法。

【請求項3】 請求項1記載の少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジンおよび少なくとも1種のメラニン生成阻害剤の相乗作用有効量を、場所に施用することを含む、ある場所におけるイネの病気を抑制する方法。

【発明の詳細な説明】

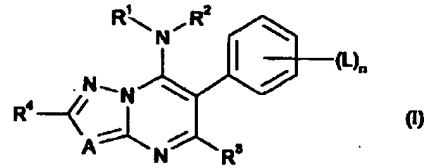
【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、殺菌・殺カビ剤として許容しうるキャリアーおよび/または界面活性剤、ならびに (a) 少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジン

【0002】

【化2】

2



〔式中、R¹およびR²は、各々独立して、水素、または場合によっては置換されているアルキル、アルケニル、アルキニル、アルカジエニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、ビスシクロアルキルもしくはヘテロシクリル基を表すか、あるいはR¹およびR²は、隣接する窒素原子と一緒に、場合によっては置換されている複素環式環を表し、R³は、水素もしくはハロゲン原子、またはアルキル基を表し、R⁴は、水素、またはアルキルもしくはアリール基を表し、Lは、ハロゲン原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルコキシ基を表し、Aは、NもしくはCR⁵（式中、R⁵は、R⁴について定義された意味をもつ）を表し、そしてnは、0または整数1～5である〕；および (b) 特にピリクラリア・オリゼ (*Pyricularia oryzae*) イネいもち病の病原菌におけるメラニン生成を阻害することができる少なくとも1種の殺菌・殺カビ有効成分、の相乗作用有効量を含有する殺菌・殺カビ組成物に関する。

【0003】

【従来の技術】式Iの殺菌・殺カビ化合物は、米国特許第4,567,263号および同第5,593,996号より公知である。

【0004】メラニン生成阻害剤 (MBI) 類は、テトラヒドロキシナフタレンをジヒドロキシナフタレンに変換するのに関与しているレダクターゼおよび/またはデヒドラターゼ酵素のいずれかを阻害することによって、メラニンのイン・ビオ合成を減じることができる化学化合物である。この種の化合物は、次の既知化合物：カルプロバミド (carpropamid)、クロベンチアジオン (chlobenthiazione)、ジクロシメット (diclocymet)、ピロキロン (pyroquilon)、フタリド (phthalide)、トリシクラゾール (tricyclazole) および例えば欧州特許第0 262 393号および日本特許出願公開第5-9165号より公知である、ある種のフェノキシアミド類を包含する。

【0005】しかしながら、そこには、式Iの化合物とMBIを組み合わせたという何らの示唆も存在しない。さらに、そのような混合物が、イネいもち病やイネ葉鞘枯凋病およびその他のようなイネの病気を抑制するために、有利に使用できるという何らの示唆もない。

【0006】驚くべきことに、野外試行における式Iの化合物とMBIの間には、これらの2種の化合物がタンク内で混合され、そしてこれらの混合剤の活性が、各有効成分の単一剤の活性と比較された場合、強い相乗

作用が見い出された。

【0007】もし、混合物の殺菌・殺カビ活性が、別々に適用された化合物の活性の和よりも大きいならば、殺菌・殺カビ剤の混合物は、相乗効果を示す。また、2種の殺菌・殺カビ剤の一定の混合物について期待される殺菌・殺カビ活性は、次のように計算することができる

(Colby, S.R., "Calculating synergistic and antagonistic response of herbicide combinations", Weeds 15, pp20-22 (1967)、参照) :

$$EE = x + y - x \cdot y / 100$$

(式中、xは、用量割合aにおける殺菌・殺カビ有効成分Aによる処理において、未処理対照と比較された効力%であり；yは、用量割合bにおける殺菌・殺カビ有効成分Bによる処理において、未処理対照と比較された効力%であり；EEは、それぞれ、用量割合a+bにおける殺菌・殺カビ有効成分AおよびBの混合物により期待される効力である)。

【0008】もし、実際の効力(E)が、期待される(計算された)効力(EE)を超えていれば、混合物は相乗効果を示している。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、許容しうるキャリヤーおよび/または界面活性剤、ならびに少なくとも1種の式Iの化合物、および少なくとも1種のメラニン生成阻害剤(MBI)の相乗作用有効量を含む殺菌・殺カビ組成物を包含する。

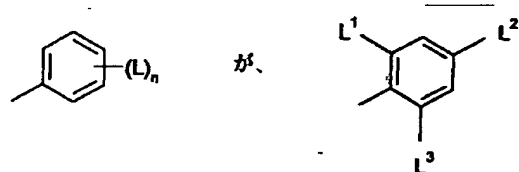
【0010】また、本発明は、少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジンおよび少なくとも1種のMBIの相乗作用有効量を、場所に適用することを含む、ある場所における植物病原性菌・カビ類の増殖を抑制する方法を包含する。

【0011】

【課題を解決するための手段】好適な式Iの化合物は、R¹およびR²が、間にある窒素原子と一緒にあって、場合によっては置換されている6員の複素環式環、特に4-メチルピペリジン環を表すか、あるいはR¹が、C₁₋₆アルキル、特にイソプロピル基、C₁₋₆ハロアルキル、特に2, 2, 2-トリフルオロエチルもしくは1, 1, 1-トリフルオロプロパ-2-イル基、またはC₃₋₈シクロアルキル基、特にシクロペンチルもしくはシクロヘキシル基を表し、そしてR²が、水素原子、またはC₁₋₆アルキル基を表し、そして/または

【0012】

【化3】

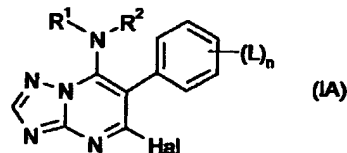


[式中、L¹は、ハロゲン原子、好ましくはフッ素もしくは塩素を表し、そしてL²およびL³は、各々独立して、水素原子もしくはハロゲン原子、好ましくはフッ素を表し、特に、L¹はフッ素を表し、L²は水素を表し、そしてL³は塩素を表すか、またはL¹~L³はフッ素を表す]を表し、そして/またはHalが、塩素原子を表す、化合物を包含する。

【0013】特に好適な実施態様では、アゾロピリミジンは、式IA

10 【0014】

【化4】



[式中、Lおよびnは、式Iについて定義された意味をもち、そしてR¹は、アルキルもしくはハロアルキル基を表し、R²は、水素原子を表すか、またはR¹およびR²は、一緒になって、主鎖に炭素原子3~6個をもつ場合によっては置換されているアルキレン基を表し、この場合、1つのCH₂基は、OもしくはNHによって置換されていてもよく、そしてHalは、ハロゲン原子を表す]の化合物である。

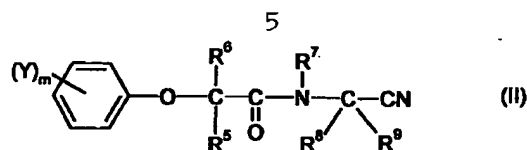
【0015】特に好適なものは、次のアゾロピリミジン：アゾロピリミジンAと略称される5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-(4-メチルピペリド-1-イル)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、アゾロピリミジンBと略称される5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-イソプロピルアミノ-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、アゾロピリミジンCと略称される5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-(2, 2, 2-トリフルオロエチルアミノ)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、およびアゾロピリミジンDと略称される5-クロロ-6-(2, 4, 6-トリフルオロフェニル)-7-(1, 1, 1-トリフルオロプロパ-2-イルアミノ)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジンである。

【0016】好適なMBIは、カルプロバミド、クロベンチアジオン、ジシクロシメット(dicyclocy met)、ピロキロン、フタリドおよびトリシクラゾールを含む。

【0017】さらに、式IIのフェノキシアミドは、好適なMBIである：

【0018】

【化5】

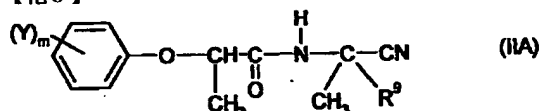


〔式中、R⁵およびR⁶は、各々独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキル基を表し；R⁷は、独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキル基を表し；R⁸およびR⁹は、各々独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルケニル基を表すか；あるいはR⁸およびR⁹は、一緒になって、アルキレン基を表してもよく；Yは、各々独立して、ハロゲン原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルケニル基か、またはシアノもしくはニトロ基を表し；mは、0または整数1，2，3もしくは4である〕。

【0019】特に好適なフェノキシアミドは、式I I A

【0020】

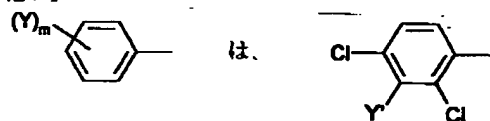
〔化6〕



〔式中、R⁹、Yおよびmは、定義された意味をもち、特に

【0021】

〔化7〕



〔式中、Y' は、水素原子、またはメチル基を表す〕を表し、そして/またはR⁹は、C₁₋₈-アルキル基を表す〕の化合物である。

【0022】もっとも好適なものは、N-(1-シアノ-1, 2-ジメチル-プロピル)-2-(2, 4-ジクロロフェノキシ)-プロピオンアミド、特に、プロピオンアミドEと略称される(2R)-および(2R/S)-N-(1-シアノ-1, 2-ジメチル-プロピル)-2-(2, 4-ジクロロフェノキシ)-プロピオンアミドの混合物、およびプロピオンアミドFと略称されるN-(1-シアノ-1-エチル-プロピル)-2-(2, 4-ジクロロ-3-メチルフェノキシ)-プロピオンアミドである。

【0023】本発明の好適な製剤は、次の成分：

- キャリヤー剤；
- 少なくとも1種の式Iのアゾピリミジン、
- 少なくとも1種のMBI、特に式I I のフェノキシアミド、
- 場合によっては泡切り剤 (foam breaking agent)、

6

特に、ペルフルオロアルキルホスホン酸および/またはペルフルオロアルキルホスフィン酸の混合物、特にDefoamer SFもしくはFluowett PL (Clariant GmbH から市販されている) を含有する製剤を包含する。

【0024】式Iの化合物およびMBIは、相乗作用を示す有効量において、一緒に施用されねばならない。これらの相乗性混合物は、広範囲の病原性真菌類、特に、綱、子のう菌類 (Ascomycetes)、担子菌類 (Basidiomycetes) および不完全菌類 (Deuteromycetes) からの真菌類に対して、顕著な効力を発揮する。したがって、それらは、イネの病気に対して有利に適用することができる。それらは、全身性であり、そして葉と同様に、水、種子外装、種苗ボックスもしくは土壌殺菌・殺カビ剤中に施用されてもよい。

【0025】本発明による混合物は、好ましくは、属：ピリクラリア (Pyricularia)、リゾクトニア (Rhizoctonia)、コクリオボルス (Cochliobolus)、セルコスボラ (Cercospora)、マグナポルテ (Magnaporthe)、アルテルナリア (Alternaria)、ドレクスレラ (Drechslera)、フサリウム (Fusarium)、ゲルラチア (Gerlachia)、アクリア (Achlya)、スクレロチウム (Sclerotium)、ジベレラ (Gibberella)、ミコスフェレラ (Myco-sphaerella)、バランシア (Balansia)、サロクラジウム (Sarocladium)、ピチウム (Pythium)、ホーマ (Phoma)、フィトフトラ (Phytophthora)、ビポラリス (Bipolaris)、クルブラリア (Curvularia)、サロクラジウム (Sarocladium)、ニグロスボラ (Nigrospora)、エンチロマ (Entyloma)、スクレロフトラ (Sclerophthora)、シリンドロクラジウム (Cylindrocladium)、ゲウマンノミセス (Gaeumannomyces)、ミロテシウム (Myrothecium)、ムコール (Mucor)、リゾプス (Rhizopus)、チレチア (Tilletia)、ウスチラゴ (Ustilago)、ウスチラギノイデア (Ustilagoidea)、ビポラリス (Bipolaris)、スクレロチウム (Sclerotium)、ボトリチス (Botrytis)、ベンツリア (Venturia)、エリシフェ (Erysiphe)、セプトリア (Septoria)、プシニア (Puccinia)、レプトスフェリア (Leptosphaeria) およびシュードセルコスボレラ (Pseudocercospora) 10、特に、種リゾクトニア・ソラニ (Rhizoctonia solani)、コクリオボルス・ミヤベナス (Cochliobolus miyabeanus)、スファルリナ・オリジナ (Sphaerulina oryzina)、レプトスフェリア・スラビニ (Leptosphaeria slavini) およびピリクラリア・オリゼ (Pyricularia oryzae) の植物病原性菌・カビ類を防除するために適用されてもよい。

【0026】本発明による式Iの化合物の適用割合は、通常は、1ヘクタール当たり有効成分5~2000グラム (g a. i.) の範囲、しばしば、30~500 g a. i. /haの割合により、満足しうる防除を達成

する。特定の適用のための最適割合は、栽培下の作物および感染している菌・カビ類の顕著な種に依存するであろうし、そして容易に、当業者に既知の生物学的試験を確立することによって決定されるであろう。

【0027】一般に、式Iの化合物の好適な適用割合は、範囲10~500 g a. i. /ha、より好ましくは30~300 g a. i. /haである。

【0028】MBIの最適割合は、栽培下の作物および菌・カビ類による感染レベルに依存するであろうし、そして容易に生物学的試験を確立することによって決定できる。

【0029】式Iの化合物対MBIの比(重量で)は、原則として1:100~100:1である。好適な比、式I:MBIは、例えば、約1:50~約50:1に、特に約1:4~約4:1に変化してもよい。

【0030】活性化合物は、本発明による適当な比において一緒に、当該技術分野で既知の通常のキャリアーおよび/または添加物と一緒にして、製剤化されるであろう。

【0031】したがって、さらに、本発明は、キャリアーおよび、有効成分として、先に定義されたような少なくとも1種の式Iの化合物および少なくとも1種のMBIを含有する殺菌・殺カビ組成物を提供する。

【0032】また、先に定義されたような式Iの化合物とMBIを、少なくとも1種のキャリアーと組み合わせることを含む、そのような組成物の製造方法が提供される。また、式Iの化合物の種々の異性体もしくは異性体混合物および/またはMBIが、種々の活性レベルもしくはスペクトルをもつてもよく、かくして、組成物が、個々の異性体もしくは異性体混合物を含有してもよいことが考えられる。

【0033】本発明による組成物は、好ましくは、有効成分を重量で(w/w)0.1%~99.9%、好ましくは0.2~80%含有する。

【0034】本発明による組成物におけるキャリアーは、例えば、植物体、種子、葉茎、土壌であってもよい処理されるべき場所に、植物が生育している水に、または根に対して、適用を容易にするためか、あるいは貯蔵、輸送もしくは取り扱いを容易にするために、有効成分が、一緒にして製剤化されるすべての材料である。キャリアーは、通常は、気体であるが、圧縮されて液体を形成する材料を含む、固体もしくは液体であってもよい。

【0035】組成物は、例えば、乳剤もしくは乳剤原液、水溶液剤、水中油乳剤、水和剤、水溶液剤、懸濁剤原液、水溶液剤、粉剤(dusts)、粒剤、水分散性粒剤、錠剤、エアゾル剤、マイクロカプセル剤、ゲル剤および他の剤形タイプに、十分確立された操作によって製造することができる。これらの操作は、有効成分を、他の物質、例えば増量剤、溶媒、固形キャリアー、界面活

性化合物(界面活性剤)、および場合によっては固形および/または液状補助剤および/またはアジュバントとともに、強力に混合および/または粉碎することを含む。適用の形式、例えば噴霧、煙霧、散布もしくは散水は、所望の対象物および与えられた環境にしたがって、組成物と同様に選ぶことができる。

【0036】溶媒は、芳香族炭化水素、例えばSolvento(商標)200、置換ナフタレン類、フタル酸エステル類、例えばフタル酸ジブチルもしくはジオクチル、脂肪族炭化水素、例えばシクロヘキサンもしくはパラフィン類、アルコール類およびグリコール類、ならびにそれらのエーテルおよびエステル、例えばエタノール、エチレングリコールモノおよびジメチルエーテル、ケトン類、例えばシクロヘキサノン、強い極性溶媒類、例えばN-メチル-2-ピロリドン、またはア-ブチロラクトン、高級アルキルピロリドン類、例えばn-オクチルピロリドンもしくはシクロヘキシルピロリドン、エポキシ化植物油エステル類、例えばメチル化ココヤシもしくはダイズ油エステル、および水であってもよい。種々の液体の混合液が、しばしば適当である。

【0037】粉剤、水和剤、水分散性粒剤もしくは粒剤のために使用できる固形キャリアーは、鉱物増量剤、例えば方解石、タルク、カオリン、モンモリロナイトもしくはアタパルジャイトまたはその他であってもよい。物理的性質は、高分散シリカゲルもしくはポリマーの添加によって改良できる。粒剤のためのキャリアーは、多孔性材料、例えば軽石、カオリン、セピオライト、ベントナイトであってもよく;非吸着性(non-sorptive)キャリアーは、方解石もしくは砂またはその他であってもよい。それに加えて、前造粒された無機もしくは有機材料が、ドロマイトもしくは粉碎植物残渣のように、使用できる。

【0038】有害生物防除(pesticidal)組成物は、しばしば、濃厚形態において製剤化され、輸送され、これが、続いて、適用前に使用者によって希釈される。界面活性剤である少量のキャリアーの存在は、この希釈の過程を容易にする。かくして、好ましくは、本発明による組成物中の少なくとも1種のキャリアーは界面活性剤である。例えば、組成物は、少なくとも1種は界面活性剤である、2種以上のキャリアーを含有できる。

【0039】界面活性剤は、製剤化されるべき一般式Iによる化合物の性質に応じて、良好な分散性、乳化性および湿潤性をもつ非イオン、陰イオン、陽イオン性もしくは双性イオン物質であってもよい。また、界面活性剤は、個々の界面活性剤の混合物も意味する。

【0040】本発明の水和剤は、適当には、有効成分5~90%w/wおよび、固形の不活性キャリアーに加えて、分散および湿潤剤3~10%w/wおよび必要ならば、安定剤および/または他の添加物、例えば浸透剤も

しくは固着剤0～10%w/wを含有するであろう。粉剤は、水和剤の組成と同様であるが、分散剤を含まない粉剤濃厚物として製剤化されてもよく、そして農場において、さらなる固形キャリアーにより希釈されて、通常、有効成分0.5～10%w/wを含有する組成物にされてもよい。水分散性粒剤および粒剤は、サイズ0.15mm～2.0mmをもち、そして種々の技術によって製剤化することができる。一般に、これらの粒剤は、有効成分0.5～90%w/wおよび添加物、例えば安定剤、界面活性剤、徐放調節剤および結合剤0～20%w/wを含有するであろう。乳剤原液は、溶媒もしくは溶媒混合液に加えて、有効成分1～80%w/v、乳化剤2～20%w/vおよび他の添加物、例えば安定剤、浸透剤および腐食抑制剤0～20%w/vを含有してもよい。懸濁剤原液は、適当には、安定な、非沈降性、流動性生成物を得るために粉砕され、そして典型的には、有効成分5～75%w/v、分散剤0.5～15%w/v、懸濁剤、例えば保護コロイドおよびチキソトロピー剤0.1～10%w/v、他の添加物、例えば消泡剤、腐食抑制剤、安定剤、浸透剤および固着剤0～10%w/v、および有効成分が実質的に不溶である水もしくは有機液体を含有する；沈降や晶出を防ぐのを助けるため、または凍結防止剤としてある種の有機固形物もしくは*

*は無機塩類が製剤中に溶解されてもよい。

【0041】水性分散剤および乳剤、例えば本発明により製剤化された製品を水で希釈することによって得られる組成物も、また本発明の範囲にはいる。

【0042】本発明の化合物の保護活性の持続期間を増強することにおいて、特に興味あることは、保護されるべき植物の環境中に、有害生物防除化合物を徐々に放出させるであろうキャリアーの使用である。

【0043】また、有効成分の生物活性は、噴霧希釈液中にアジュバントを含むことによって増強することができる。アジュバントは、ここでは、有効成分の生物活性を増強できるが、それ自体有意には生物学的に活性ではない物質として定義される。アジュバントは、助製剤化剤(coformulant)もしくはキャリアーとして、製剤中に含まれても、また有効成分を含有する製剤と一緒に噴霧タンク中に添加されてもよい。

【0044】商品として、組成物は、好ましくは、最終使用者が、一般に希釈された組成物を使用するので、濃厚形態において存在してもよい。組成物は、有効成分0.001%までの濃度に希釈されてもよい。用量は、通常、範囲0.01～10kg a. i. /haである。

【0045】本発明により使用できる製剤の例は、次のとおりである：

SC-A

有効成分	アゾロピリミジンA	100.0g
分散剤	Morwet D425 ¹⁾	25.0g
分散剤	Pluronic (商標) PE10500 ²⁾	5.0g
消泡剤	Rhodorsil (商標) 426R ³⁾	1.5g
分散剤	Rhodopol (商標) 23 ³⁾	2.0g
凍結防止剤	プロピレングリコール	80.0g
殺菌剤(biocidal agent)Proxel (商標) GXL ⁴⁾		1.0g
水		1000mlまで

SC-B/SC-D

有効成分	アゾロピリミジンBまたはD	100.0g
分散剤	Soprophor (商標) FL ³⁾	30.0g
消泡剤	Rhodorsil (商標) 426R ³⁾	1.5g
分散剤	Rhodopol (商標) 23 ³⁾	2.0g
凍結防止剤	プロピレングリコール	80.0g
殺菌剤	Proxel (商標) GXL ⁴⁾	1.0g
水		1000mlまで

SC-E

有効成分	プロピオンアミドE	200.0g
分散剤	Soprophor (商標) FL ³⁾	25.0g
消泡剤	Rhodorsil (商標) 426R ³⁾	1.5g
分散剤	Rhodopol (商標) 23 ³⁾	2.0g
凍結防止剤	プロピレングリコール	80.0g
殺菌剤	Proxel (商標) GXL ⁴⁾	1.0g
水		1000mlまで

SC-A/E

有効成分	アゾロピリミジンA	60.0g
------	-----------	-------

11		12
有効成分	プロピオンアミドE	120.0g
分散剤	Soprophor (商標) FL ³⁾	25.0g
消泡剤	Rhodorsil (商標) 426R ³⁾	1.5g
分散剤	Rhodopol (商標) 23 ³⁾	2.0g
凍結防止剤	プロピレングリコール	80.0g
殺菌剤	Proxel (商標) GXL ⁴⁾	1.0g
水		1000mlまで
DC-A		
有効成分	アゾロピリミジンA	100.0g
湿潤剤	Pluronic (商標) PE6400 ²⁾	50.0g
分散剤	Lutensol (商標) TO12 ²⁾	50.0g
溶媒	ベンジルアルコール	1000mlまで
DC-B		
有効成分	アゾロピリミジンB	100.0g
湿潤剤	Pluronic (商標) PE6400 ²⁾	50.0g
分散剤	Lutensol (商標) TO12 ²⁾	50.0g
溶媒	ベンジルアルコール	1000mlまで

1) Witco製、市販品

2) BASF AG, Germany製、市販品

3) Rhoe-ne-Poulenc製、市販品

4) Zeneca製、市販品。

プロピオンアミドEを含有する製剤SC-Eは、アゾロピリミジンA、BもしくはDを含有している他の製剤SC-A、SC-B、SC-D、DC-AもしくはDC-Bのいずれかとタンク内混合される。

【0046】好適な実施態様では、有効成分は、各々、単一製剤としてタンク混液(mix)と一緒に添加される。

【0047】したがって、本発明は、2種の別々の製剤：

(i) 少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジン、特にアゾロピリミジンA、B、CもしくはD、慣用のアジュバントおよびキャリアーを含有する製剤；

(ii) 少なくとも1種のMBI、好ましくは式IIのフェノキシアミド、特にプロピオンアミドEもしくはF、慣用のアジュバントおよびキャリアー、からなる噴霧混合液の製造キットに関する。

【0048】好適な実施態様では、キットは、タンク混液への製剤(i)と(ii)の容易なそして正確な添加を行わせる分散手段を備えた2本のボトルを含む。

【0049】アゾロピリミジンAとプロピオンアミドEを含有する製剤SC-A/Eは、本発明によるタンク混液を製造するために、直接使用することができる。

【0050】本発明による組成物は、好ましくは、有効成分を重量で0.5%~95%含有する。

【0051】本発明の組成物は、有効成分濃度0.0001%まで希釈されてもよい。

【0052】本発明の組成物は、植物もしくはそれらの環境に、他の活性物質と同時に、または続いて、適用す*50

*ることができる。これらの他の活性物質は、肥料、微量元素を供与する薬剤もしくは他の植物生長に影響する調製物のいずれでもよい。しかしながら、また、それらは、選択性の除草剤、殺虫剤、殺菌・殺カビ剤、殺バクテリア剤、殺線虫剤、殺藻剤、殺軟体動物剤、殺鼠剤、殺ウイルス剤、植物に耐性を誘導する化合物、ウイルス、バクテリア、線虫類、真菌類およびその他の微生物のような生物防除剤、鳥類および動物類の忌避剤、そして植物生長調節剤、または適当ならば、製剤化技術分野で常用されるその他のキャリアー物質、界面活性剤もしくは適用を促進する他の添加物と一緒にしたこれらの調製物の数種の混合物であってもよい。

【0053】他の殺菌・殺カビ化合物の例は、アニラジン、アゾキシストロビン、ベナラキシル、ベノミル、ピナバクリル、ピテルタノール、プラスチシジンS、ボルドー混液、プロムコナゾール、ブピリメート、カプタフォル、カプタン、カルベンダジム、カルボキシシン、クロロタロニル、クロゾリネート、銅剤、例えばオキシ塩化銅および硫酸銅、シクロヘキシミド、シモキサニル、シボフラム、シプロコナゾール、シプロジニル、ジクロフルアニド、ジクロン、ジクロラン、ジクロブトラゾール、ジクロメジン、ジエトフェンカルブ、ジフェノコナゾール、ジフルメトリン、ジメチリモル、ジメトモルフ、ジニコナゾール、ジノカップ、ジタリムホス、ジチアノン、ドデモルフ、ドジン、エジフェンホス、エボキシコナゾール、エタコナゾール、エチリモル、エトリジアゾール、ファモキサドン、フェナパニル、フェナリモル、フェンブコナゾール、フェンフラム、フェンヘキサ

ミド、フェンビクロニル、フェンプロピジン、フェンプロピモルフ、フェンチン、フェンチン アセテート、フェンチンヒドロキシド、フェリムゾン、フルアジナム、フルジオキシニル、フルメトベル、フルキンコナゾール、フルシラゾール、フルスルファミド、フルトラニル、フルトリアフォル、フォルベット、フォセチルアルミニウム、フベリダゾール、フララキシル、フラメトビル、グアザチン、ヘキサコナゾール、イマザリル、イミノクタジン、イブコナゾール、イプロジオン、イプロバリカルブ、イソプロチオラン、カスガマイシン、キタジンP、クレソキシムーメチル、マンコゼブ、マネブ、メバニピリム、メプロニル、メトラキシル、メトコナゾール、メトフロキサム、ミクロブタニル、ネオアソジン、ニッケル ジメチルジチオカルバメート、ニトロタールイソプロピル、ヌアリモル、オフレース、有機水銀化合物、オキサジキシル、オキシカルボキシン、ペンコナゾール、ペンシクロン、フェナジノキシド、ポリオキシンド、ポリラム、プロベナゾール、プロクロラツツ、プロシミジオン、プロバモカルブ、プロビコナゾール、プロビネブ、ピラゾホス、ピリフェノックス、ピリメタニル、ピロキシフル、キノメチオネート、キノキシフェン、キントゼン、スピロキサミン、SSF-126、SSF-129、ストレプトマイシン、硫黄、テブコナゾール、テクロフタラム、テクナゼン、テトラコナゾール、チアベンダゾール、チフルザミド、チオファネートーメチル、チラム、トルクロホスメチル、トリルフルアニド、トリアジメフォン、トリアジメノール、トリアズブチル、トリアゾキシド、トリデモルフ、トリフルミゾール、トリフォリン、トリチコナゾール、バリダマイシンA、ピンクロゾリン、XRD-563、ザリラミド、ジネブ、ジラムである。

【0054】殺虫化合物の例は、 α -シベルメトリン、ベンフラカルブ、BPMC、ブプロフェジン、カルボスルファン、カルタップ、クロルフエンピンホス、クロルピリホスーメチル、シクロプロトリン、シベルメトリン、エスフェンバレレート、エトフェンプロックス、フェンプロパトリン、フルシトリネート、フルフェノクスロン、ヒドrameチルノン、イミダクロアリド、イソキサチオン、MEP、MPP、ニテンピラム、PAP、ベルメトリン、プロバホス、ピメトロジン、シラフルオフエン、テブフェノジド、テフルベンズロン、テメホス、テルブホス、テトラクロルピンホスおよびトリアザメートである。

【0055】生物防除剤の例は、バチルス・チューリンジエンシス (*Bacillus thuringiensis*)、ベルチシリウム・レカニイ (*Verticillium lecanii*)、オートグラフィカ・カリホルニカ (*Autographica californica*) NP V、ビュウバリア・バッシアナ (*Beauveria bassiana*)

a)、アンペロミセス・キスカリス (*Ampelomyces quisqualis*)、バチルス・ズブチリス (*Bacillus subtilis*)、シュードモナス・フルオレッセンス (*Pseudomonas fluorescens*)、ストレプトミセス・グリセオビリジス (*Streptomyces griseoviridis*) およびトリコデルマ・ハルジアナム (*Trichoderma harzianum*) である。

【0056】植物において全身性獲得耐性を誘導する化学薬剤の例は、イソニコチン酸もしくはその誘導体、2, 2-ジクロロ-3, 3-ジメチルシクロプロピルカルボン酸およびBIONである。

【0057】本発明は、菌・カビ類の感染に対する作物および装飾植物の保護において、広い応用性をもつ。好適な作物は、イネ、特に水稻である。保護の持続期間は、通常は、選ばれる個々の化合物、そしてまた、種々の外部因子、例えば気候に依存し、これらの影響は、通常、適当な製剤の使用によって軽減される。

【0058】次の実施例は、本発明をさらに具体的に説明する。しかしながら、本発明が、以下に示される特定の実施例に限定されないことを理解すべきである。

【0059】

【実施例】野外試験では、製剤化されたアゾプロリミジンA、BもしくはD (100 g/l DC-AもしくはDC-B; 100 g/l SC-D) および製剤化されたプロピオンアミドE (200 g/l SC-E) を使用した。

【0060】本発明の方法の野外試験は、フィリピン、ブラジルおよび日本におけるイネ農地において実施された。

【0061】材料および適用方法：変種「IR-50」のイネ種子を、0.07 m² (0.23 x 0.3 m) プラスチックボックスの砂/庭土中に蒔いた。第1回では、14日後、Z14/20生育期において、殺菌・殺カビ化合物を植物に噴霧した。製剤化した化合物を秤取り、水で希釈した。有効成分1 ha当たり100、200および400 g相当量を、噴霧容量1 ha当たり1000 lを用いて、手持ち噴霧器により適用した。単一化合物および混合物の用量を下記の結果の表において示す。1処理当たり3並列のボックスを用いた。噴霧を、第1回適用後7日目に、同じ化合物/化合物混合物を用いて、同用量および同噴霧容量/haにおいて繰り返した。

【0062】病気の評価：イネいもち病およびイネ葉鞘枯凋病の調査を、第1回適用後14日目 (=第2回適用後7日目) に実施した。感染された葉面積パーセントを評価した。病気防除に対する化合物/化合物混合物の効力を、式：

【0063】

【数1】

$$\text{病気抑制\%} = 100 \frac{\text{処理植物における病気\%}}{\text{未処理植物における病気\%}} \times 100\%$$

を用いることによって算出した。

【0064】相乗性の測定：相乗性は、先に示した2つのCOLBYの式について、特定の処理の病気防除\%値を用いて計算した。

【0065】(例1)ピリクラリア・オリゼに起因するイネいもち病の防除

ピリクラリア・オリゼによる感染：第1回の化合物適用後3時間目に(この場合植物は乾燥していた)、ピリクラリア・オリゼのイン・ビトロで生育した分生孢子懸濁液を、手持ち噴霧器を用いてイネ植物体の葉面に接種した。分生孢子濃度は、約 $10^6/\text{ml}$ であった。次い *

表1

実験における測定値およびCOLBYの式を用いる期待値としての、単独もしくは混合物で適用された場合のDC-AおよびDC-BおよびSC-Eのイネいもち病抑制\%

製剤	用量 (g/ha)	効力 (%)	
		測定値	期待値
DC-A	200	24	-
DC-A	400	65	-
DC-B	200	28	-
DC-B	400	61	-
SC-E	100	18	-
SC-E	200	41	-
DC-A + SC-E	200 + 100	84	38
DC-A + SC-E	400 + 100	87	72
DC-B + SC-E	200 + 100	73	41
DC-B + SC-E	400 + 100	76	68

(例2) リゾクトニア・ソラニの防除

リゾクトニア・ソラニによる感染：化合物/化合物混合物の第2回適用後3時間目、植物の根元の土壌表面上に種菌を均等に散布することによって、リゾクトニア・ソラニ(米粒-粃殻培地において生育)を植物に接種した。次いで、植物を湿潤チェンバー内に24時間置いた。その後、植物を、イネ葉鞘枯凋病を評価できるまで、室外に移動した。

40

【0068】適用された製剤、適用された有効成分の投与割合(1ヘクタール当たりの有効成分グラム数で表される)、病気防除の効力として表された結果、およびCOLBYの式にしたがって計算される期待される効力を、下記表IIに記した。

【0069】病気の徴候(イネいもち病および葉鞘枯凋病)を、生成物の第2回適用(DAT)後7日目に調査した。

【0070】

【表2】

50

*で、植物を、相対湿度約100%、24~26℃の湿潤チェンバー内に24時間置いた。次いで、植物を、イネいもち病を評価できるまで、室外に移動した。

【0066】適用された製剤、適用された有効成分の投与割合(1ヘクタール当たりの有効成分グラム数で表される)、病気防除の効力として表された結果、およびCOLBYの式にしたがって計算された期待される効力を、下記表Iに記した。

【0067】

【表1】

表II

実験における測定値およびCOLBYの式を用いる期待値としての、
単独もしくは混合物で適用された場合のDC-AおよびDC-B
およびSC-Eのイネ葉鞘枯病抑制%

製剤	用量 (g/ha)	効力 (%)	
		イネ葉鞘枯病	
		測定値	期待値
DC-A	200	45	-
DC-A	400	87	-
DC-B	200	75	-
DC-B	400	85	-
SC-E	100	18	-
SC-E	200	23	-
DC-A + SC-E	200 + 100	88	55
DC-A + SC-E	400 + 100	89	89
DC-B + SC-E	200 + 100	98	79
DC-B + SC-E	400 + 100	95	88

*

表III

実験における測定値およびCOLBYの式を用いる期待値としての、
単独もしくは混合物で適用された場合のSC-AおよびSC-Eの
イネいもち病抑制%

製剤	用量 (g/ha)	効力 (%)	
		イネ鞘枯れ (rice sheath blight)	
		測定値	期待値
SC-A	50	41	-
SC-A	100	71	-
SC-A	200	72	-
SC-E	100	83	-
SC-E	150	91	-
SC-E	200	93	-
SC-A + SC-E	50 + 100	98	90
SC-A + SC-E	100 + 100	97	95
SC-A + SC-E	50 + 150	95	95

(例4) ピリクラリア・オリゼの防除

ブラジルの農地区画に、イネ変種IAC-165を直接
播種した。各農地区画は、9m²であり、そして各処理
を3回反復した。均一な発芽および病気の発生を確保す
るために、上部からの散水を使用した。十分な病気
が、それ自体自然に確立されたので、人為的植菌は必要
ではなかった。

*

* (例3) ピリクラリア・オリゼの防除

日本の農地で確立されたその他の実験では、水稻変種
「こしひかり」を、種苗ボックスにおいて生育させ、そ
して10m²の区画の農地に移植した。移植46~53
日後、製剤SC-AおよびSC-Eおよびこれらの製剤
のタンク内混合液を、水で希釈した後、噴霧装置を用い
て1区画当たり1リットル相当量を適用して、植物に噴
霧した。化合物Aは、100g/l SCとして製剤化
されていた。

- 10 【0071】各処理は、3区画（3並列）で適用され
た。また、未処理区画もおいた。第2回処理後15日目
に、未処理イネ植物（対照）の葉面積17%が、イネい
もち病に感染された。また、病気のレベル（感染葉面積
%）を、処理された植物において調査し、処理の効力
（%）を測定した。本発明による混合物および単一化合
物の効果を表IIIに示した。

【0072】

【表3】

- ※【0073】各処理2回の適用を、7日間隔で1000
l/haの水溶液量において実施した。病気防除の肉
眼的調査を、第1回適用後14日目に実施した。

【0074】本発明による混合物（SC-DおよびSC
-E）および単一化合物の効果を表IVに示した。

【0075】

【表4】

表IV

実験における測定値およびCOLBYの式を用いる期待値としての、
単独もしくは混合物で適用された場合のSC-DおよびSC-Eの
イネいもち病抑制%

製剤	用量(g/ha)	効力(%)	
		測定値	測定値
SC-D	30	8	-
SC-E	100	4	-
SC-D + SC-E	30 + 100	29	12

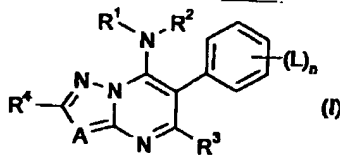
結果：表I～IVに示された結果は、MBI、例えばフェノキシアミドおよびアゾロピリミジンの混合物が相乗作用を発揮することを示している。本発明の特徴および態様は以下のとおりである。

【0076】1. 許容しうるキャリアーおよび/または界面活性剤、ならびに

(a) 少なくとも1種の式Iのアゾロピリミジン

【0077】

【化8】

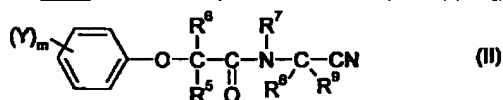


【式中、R¹およびR²は、各々独立して、水素、または場合によっては置換されているアルキル、アルケニル、アルキニル、アルカジエニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、ビスシクロアルキルもしくはヘテロシクリル基を表すか、あるいはR¹およびR²は、隣接する窒素原子と一緒に、場合によっては置換されている複素環式環を表し、R³は、水素もしくはハロゲン原子、またはアルキル基を表し、R⁴は、水素、またはアルキルもしくはアリール基を表し、Lは、ハロゲン原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルコキシ基を表し、Aは、NもしくはCR⁵（式中、R⁵は、R⁴について定義された意味をもつ）を表し、そしてnは、0または整数1～5である】；および
(b) メラニン生成を阻害することができる少なくとも1種の殺菌・殺カビ有効成分、の相乗作用有効量を含む殺菌・殺カビ組成物。

【0078】2. メラニン生成阻害剤が、式II

【0079】

【化9】

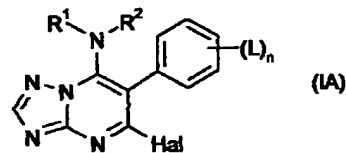


* 【式中、R⁵およびR⁶は、各々独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキル基を表し；R⁷は、独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキル基を表し；R⁸およびR⁹は、各々独立して、水素原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルケニル基を表すか；あるいはR⁸およびR⁹は、一緒になって、アルキレン基を表してもよく；Yは、各々独立して、ハロゲン原子、または場合によっては置換されているアルキルもしくはアルケニル基か、またはシアノもしくはニトロ基を表し；mは、0または整数1、2、3もしくは4である】のフェノキシアミドである、第1項記載の組成物。

【0080】3. アゾロピリミジンが、式IA

【0081】

【化10】

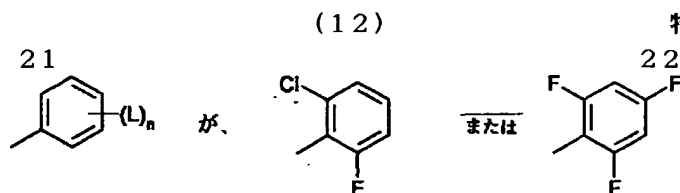


【式中、Lおよびnは、式Iについて定義された意味をもち、そしてR¹は、アルキルもしくはハロアルキル基を表し、R²は、水素原子を表すか、またはR¹およびR²は、一緒になって、主鎖に炭素原子3～6個をもつ場合によっては置換されているアルキレン基を表し、この場合、1つのCH₂基は、OもしくはNHによって置換されていてもよく、そしてHalは、ハロゲン原子を表す】の化合物である、第1項記載の組成物。

【0082】4. Halが塩素原子を表し、そして

【0083】

【化11】



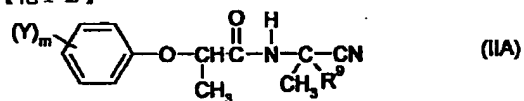
を表す、式 I A の化合物を含有している第 3 項記載の組成物。

【0084】5. アゾロピリミジンが、5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-(4-メチルピペリド-1-イル)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-イソプロピルアミノ-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、5-クロロ-6-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-7-(2, 2, 2-トリフルオロエチルアミノ)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン、および5-クロロ-6-(2, 4, 6-トリフルオロフェニル)-7-(1, 1, 1-トリフルオロプロプ-2-イルアミノ)-[1, 2, 4]トリアゾロ[1, 5-a]ピリミジン：からなる群から選ばれる、第4項記載の組成物。

【0085】6. フェノキシアミドが、式 I I A

【0086】

【化12】

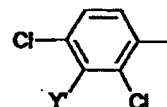
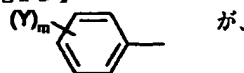


[式中、R⁹、Y および m は、定義された意味をもつ] の化合物である、第 2 項記載の組成物。

*【0087】7.

【0088】

【化13】



[式中、Y' は、水素原子、またはメチル基を表す] を表す、式 I I A の化合物を含有している第 6 項記載の組成物。

【0089】8. R⁹がC₁₋₈-アルキル基を表す、式 I I A の化合物を含有している第 7 項記載の組成物。

【0090】9. メラニン生合成阻害剤 (b) の式 I のアゾロピリミジン (a) に対する比 (重量で) が、0.1:1~10:1 である、第 1 項記載の組成物。

【0091】10. 第 1 項記載の少なくとも 1 種の式 I のアゾロピリミジンおよび少なくとも 1 種のメラニン生合成阻害剤の相乗作用有効量を、場所に施用することを含む、ある場所における植物病原性菌・カビ類の増殖を抑制する方法。

【0092】11. 第 1 項記載の少なくとも 1 種の式 I のアゾロピリミジンおよび少なくとも 1 種のメラニン生合成阻害剤の相乗作用有効量を、場所に施用することを含む、ある場所におけるイネの病気を抑制する方法。

* 30

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テマコード (参考)

)

(A 01 N 43/90

37:18)

(72)発明者 レスリー・メイ

イギリス・バークシャー アールジー41

1 ジエイジエイ・ウオキングラム・コモンズ

ロード25